#### (19)日本国特許庁(JP)

## (12) 公開特許公報(A)

FΙ

(11)特許出願公開番号

### 特開平5-202355

(43)公開日 平成5年(1993)8月10日

(51)Int.CL<sup>5</sup>

識別記号 庁内整理番号

技術表示箇所

C 0 9 K 11/06 C 0 8 G 61/00 Z 6917-4H

H 0 5 B 33/14

8215-4 J

審査請求 未請求 請求項の数4(全 9 頁)

(21)出願番号

特願平4-13756

(71)出願人 000002093

(22)出願日

平成4年(1992)1月29日

住友化学工業株式会社

大阪府大阪市中央区北浜 4丁目 5番33号

(72)発明者 大西 敏博

茨城県つくば市北原 6 住友化学工業株式

会社内

(72)発明者 野口 公信

茨城県つくば市北原 6 住友化学工業株式

会社内

(72)発明者 土居 秀二

茨城県つくば市北原 6 住友化学工業株式

会社内

(74)代理人 弁理士 諸石 光▲ひろ▼ (外1名)

#### (54)【発明の名称】 有機エレクトロルミネッセンス素子

#### (57)【要約】

【目的】高分子発光材料を発光層とした低電圧駆動、高輝度の有機EL素子を提供する。

【構成】 発光層として下記式(1)

 $-Ar-CH=CH- \qquad (1)$ 

〔式中Arはビニレン基と連続した炭素 - 炭素共役結合を形成する芳香族基または複素環化合物基〕で表される少なくとも2種の繰り返し単位より構成される共役系共重合体を含み、該共役系共重合体を構成する繰り返し単位が、該繰り返し単位のそれぞれの単独重合体の光吸収端波長のエネルギーが最大のものと最小のものとの間に0.05eV以上の差を有するものの組合せからなるものを用いた有機エレクトロルミネッセンス素子。

#### 【特許請求の範囲】

【請求項1】少なくとも一方が透明または半透明である 1対の陽極および陰極からなる電極間に、少なくとも発 光層を有する有機エレクトロルミネッセンス素子におい て、該発光層が下記式(1)

#### -Ar-CH=CH-(1)

〔式中Arはビニレン基と連続した炭素ー炭素共役結合 を形成する芳香族基または複素環化合物基〕で表される 少なくとも2種の繰り返し単位より構成される共役系共 重合体を含み、該共役系共重合体を構成する繰り返し単 10 位が、該繰り返し単位のそれぞれの単独重合体の光吸収 端波長のエネルギーが最大のものと最小のものとの間に\*

\* 0. 05 e V以上の差を有するものの組合せからなるこ とを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項2】上記式(1)で表される該繰り返し単位の 少なくとも1種が炭素数4以上のアルキル基、アルコキ シ基およびアルキルチオ基、炭素数6以上のアリールオ キシ基ならびに炭素数4以上の複素環化合物基から選ば れた少なくとも1種の置換基を少なくとも1個有する炭 素-炭素共役結合を形成する芳香族基または複素現化合 物基を有することを特徴とする請求項1記載の有機エレ クトロルミネッセンス素子。

【請求項3】該共役系共重合体が下記化1、

## $+(Ar_1-CH=CH)_{+}-(Ar_2-CH=CH)_{m}_{n}$

〔式中Ar1、Ar2 はビニレン基と連続した炭素-炭 素共役結合を形成する芳香族基または複素環化合物基 で、且つAri およびArz の少なくとも一方が炭素数 4以上のアルキル基、アルコキシ基およびアルキルチオ 基、炭素数6以上のアリールオキシ基ならびに炭素数4 以上の複素環化合物基から選ばれた少なくとも1種の置 換基を少なくとも1個有する芳香族基または複素環化合 物基であり、1、mは1以上の整数、nは1以上の整 数、且つ (1+m)×nは3以上の整数、0.1<1/ m<10である。〕で表される共重合体であることを特 徴とする請求項1記載の有機エレクトロルミネッセンス 素子。

【請求項4】該共役系共重合体が、化1において1=m =1の交互共重合体である請求項3記載の有機エレクト ロルミネッセンス素子。

#### 【発明の詳細な説明】

#### [0001]

【産業上の利用分野】本発明は有機エレクトロルミネッ センス素子(有機EL素子)に関する。詳しくは、共役 系共重合体を発光材料に用いた有機EL素子に関する。 [0002]

【従来の技術】無機蛍光体を発光材料として用いた無機 エレクトロルミネッセンス素子 (無機EL素子)は、例 えばバックライトとしての面状光源やフラットパネルデ ィスプレイ等の表示装置に用いられているが発光させる 40 のに高電圧の交流が必要であった。最近、Tangらは 有機蛍光色素を発光層とし、これと電子写真の感光体等 に用いられている有機電荷輸送化合物とを積層した二層 構造を有する有機EL素子を作製し、低電圧駆動、高効 率、高輝度の有機EL素子を実現させた(特開昭59-194393号公報)。有機EL素子は、無機EL素子 に比べ、低電圧駆動、高輝度に加えて多数の色の発光が 容易に得られるという特長があることから素子構造や有 機蛍光色素、有機電荷輸送化合物について多くの試みが 報告されている(ジャパニーズ・ジャーナル・オブ・ア※50 〔式中Arはビニレン基と連続した炭素-炭素共役結合

※プライド・フィジックス (Jpn. J. Appl. Ph ys.)第27巻、L269頁(1988年)〕、〔ジ ャーナル・オブ・アプライド・フィジックス (J. Ap pl. Phys.)第65卷、3610頁(1989 年)〕。これまでに、発光層としては、低分子量の有機 蛍光色素が一般に用いられており、高分子量の発光材料 としては、WO9013148号公開明細書、特開平3 -126787号公報、アプライド・フィジックス・レ ターズ (Appl. Phys. Lett.) 第58巻、 1982頁 (1991年) などで提案されているにすぎ なかった。

#### [0003]

【発明が解決しようとする課題】しかしながら、これま で報告されてきた高分子発光材料を用いた有機EL素子 30 は駆動電圧が高く、輝度も必ずしも十分とはいえないも のであった。高分子発光材料は熱的に安定であり、また 塗布法により容易に均一性に優れた発光層を形成できる ことから、それらの長所を生かしながら、より駆動電圧 が低く、高輝度である有機EL素子が要望されている。 【0004】本発明の目的は、高分子発光材料を発光層 とした低電圧駆動、高輝度の有機EL素子を提供するこ とにある。

#### [0005]

【課題を解決するための手段】本発明者等は、高分子発 光材料を発光層として用いた有機EL素子の低電圧駆 動、高輝度化を鋭意検討してきた。その結果、高分子発 光材料として共役系共重合体を発光層として用いること により低電圧駆動、高輝度の有機EL素子が実現される ことを見い出し、本発明に至った。

【0006】すなわち、本発明は、少なくとも一方が透 明または半透明である一対の陽極および陰極からなる電 極間に、少なくとも発光層を有する有機エレクトロルミ ネッセンス素子において、該発光層が下記式(1)

$$-Ar-CH=CH- \qquad (1)$$

(3)

を形成する芳香族基または複素環化合物基〕で表される 少なくとも2種の繰り返し単位より構成される共役系共 重合体を含み、該共役系共重合体を構成する繰り返し単 位が、該繰り返し単位のそれぞれの単独重合体の光吸収 端波長のエネルギーが最大のものと最小のものとの間に 0.05eV以上の差を有するものの組合せからなるこ とを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子を提 供することにある。 \*【0007】以下、本発明による有機EL素子について 詳細に説明する。本発明に用いられる発光材料としての 上記共役系共重合体は繰り返し単位が前記式(1)で表 される少なくとも2種の繰り返し単位を有するものであ る。Arとしては、下記化2

[0008]

【化2】 R<sub>26</sub> R<sub>25</sub>  $R_{18}$ R<sub>14</sub> R<sub>15</sub> R<sub>16</sub> R<sub>17</sub> R<sub>21</sub> R<sub>22</sub> R<sub>33</sub> R<sub>31</sub>· R<sub>35</sub>

R<sub>55</sub>

(R1 ~R57はそれぞれ独立に水素、炭素数1~20の アルキル基、アルコキシ基およびアルキルチオ基、炭素 ※に炭素数4~14の複素環化合物基から選ばれた基である。)で表される基が例示される。

数6~18のアリール基およびアリールオキシ基ならび※50 【0009】これらのなかでフェニレン基、置換フェニ

レン基、ビフェニレン基、置換ビフェニレン基、ナフチ レン基、置換ナフチレン基、チエニレン基および置換チ エニレン基が好ましい。ここで、置換基について述べる と、炭素数1~20のアルキル基としては、例えば、メ チル基、エチル基、プロピル基、ブチル基、ペンチル 基、ヘキシル基、ヘプチル基、オクチル基、ラウリル基 などであり、メチル基、ペンチル基、ヘキシル基、ヘプ チル基が好ましい。または炭素数1~20のアルコキシ 基としては、メトキシ基、エトキシ基、プロポキシ基、 プチルオキシ基、ラウリルオキシ基などであり、メトキ シ基、エトキシ基、ペンチルオキシ基、ヘキシルオキシ 基、ヘプチルオキシ基が好ましい。アルキルチオ基とし ては、メチルチオ基、エチルチオ基、プロピルチオ基、 ブチルチオ基、ペンチルチオ基、ヘキシルチオ基、ヘプ チルチオ基、オクチルチオ基、ラウリルチオ基などであ り、メチルチオ基、エチルチオ基、ペンチルチオ基、ヘ キシルチオ基、ヘプチルチオ基が好ましい。アリール基 としては、フェニル基、4-C1 ~C12アルコキシフェ ニル基、4-C1 ~C12アルキルフェニル基、1-ナフ チル基、2-ナフチル基などが例示される。アリールオ キシ基としては、フェノキシ基が例示される。複素環化 合物基としては2ーチエニル基、2ーピロリル基、2ー フリル基、2-、3-または4-ピリジル基などが例示 される。

\*【0010】これらの繰り返し単位から、単独重合体と した場合の光吸収端波長のエネルギーが最大のものと最 小のものの差が0.05eV以上異なる少なくとも2種 の繰り返し単位を選び、共役系共重合体とすることによ り、発光強度の高い有機EL素子を与える発光材料が得 られる。溶剤への溶解性等、成膜性のよい共役系共重合 体を得るには少なくとも1種の繰り返し単位中のArが 炭素数4~20のアルキル基、アルコキシ基またはアル キルチオ基、炭素数6~18のアリール基またはアリー ブトキシ基、ペンチルオキシ基、ヘキシルオキシ基、ヘ 10 ルオキシ基、あるいは炭素数4~14の複素環化合物基 を置換基として1個以上有する芳香族基または複素環化 合物基であることが好ましい。なお、1つの共重合体を 構成する繰り返し単位は2種類である必要はなく、3種 類以上であってもよい。

6

【0011】また、共重合比は共重合体を構成する少な くとも1種の繰り返し単位の数が共重合体中の5~95 %の範囲内にあるのが好ましく、10~90%の範囲内 にあるのがより好ましい。また、発光材料に使用の共役 系共重合体としてはランダム共重合体、ブロック共重合 体、交互共重合体などがあり、いずれも好適に用いられ るが、実質的に連鎖に規則性をもった下記化3で示され る共役系交互共重合体が最も合成の際の構造制御が比較 的容易であり、溶解性も優れているので好ましい。

[0012] 【化3】

# $+(Ar_1-CH=CH)_1-(Ar_2-CH=CH)_m)_n$

〔式中Ari、Arz は前記式(1)のArから選ばれ る基で、かつAr1 およびAr2 の少なくとも一方は炭 30 素数4~20のアルキル基、アルコキシ基またはアルキ ルチオ基、炭素数6~18のアリール基またはアリール オキシ基、あるいは炭素数4~14の複素環化合物基を 1個以上有する芳香族基または複素環化合物基であり、 1、mは1以上の整数、nは1以上の整数を表わし、且 つ (1+m)×nは3以上の整数、0.1<1/m<1 Oである。) ここで、Ari またはAr2 はそれぞれの※

※繰り返し単位からなる単独重合体のの光吸収端波長のエ ネルギーの差が0.05eV以上異なる条件を満たすも のを選べば良い。発光材料として好ましい交互共重合体 としては1およびmが1のものであり、例えば下記化 4、化5および化6で示す繰り返し構造を有する共重合 体が挙げられる。

[0013] 【化4】

7

$$-$$
CH=CH $-$ CH=CH $-$ n

$$R_{60}$$
 $CH=CH-CH=CH$ 
 $R_{61}$ 

[0014]

および 【0015】 ※【化6】

×

(上記構造式中、置換基R58~R71はそれぞれ独立に炭素数4~20のアルキル基、アルコキシ基またはアルキルチオ基、炭素数6~18のアリール基またはアリールオキシ基、あるいは炭素数4~14の複素環化合物基で10ある。)また、ランダム共重合体、ブロック共重合体等においてもこれらと同様の繰り返し単位の組み合わせが好ましい。

【0016】これらの中で、置換基R58~R71がペンチル基、ヘキシル基、ヘプチル基、ペンチルオキシ基、ヘキシルオキシ基、ペンチルチオ基、ヘキシルチオ基またはヘプチルチオ基であるものが特に好ましい。

【0017】本発明に使用の共役系共重合体の重合度は特に限定されず、繰り返し単位の構造によっても変わるが、成膜性の点から一般には3~10000、好ましくは5~3000、より好ましくは10~2000である。化3で示される連鎖に規則性をもった共役系共重合体において、nは共重合体の繰り返し単位の数を表しているが、各構成単位の繰り返し数、1、mの値により好ましい範囲は異なる。1+mが2の場合は、nは5以上が良好な成膜性を有するので好ましく、一方1+mが10以上の場合は、nは1以上が良好な成膜性を有するので好ましい。

【0018】これらの有機溶媒可溶性の共役系共重合体 30 を用いることにより、溶液から成膜する場合、この溶液を塗布後乾燥により溶媒を除去するだけでよく、また、後述する電荷輸送材料を混合した場合においても同様な手法が適用でき、製造上非常に有利である。

【0019】共役系共重合体を発光材料として用いた場合の共重合体中での発光部位は必ずしも明らかではないが、単独重合体としたときに吸収端波長のエネルギー(バンドギャップ)の小さい繰り返し単位の部分の存在が発光に寄与していると考えられ、それぞれの繰り返し単位からなるホモボリマーの吸収端波長エネルギー(バ 40ンドギャップ)の大きさの差が0.05eV以上であるものを有する共役系共重合体が好ましい。この差が0.05eV未満であると、室温程度でも熱エネルギーによってエキシトンが拡散し、発光効率が必ずしも高くならないと考えられる。特に上記Ar1 およびAr2 をそれぞれフェニレン基および複素環化合物基等異なる骨格の基を用いるとバンドギャップの差を大きくすることができる。

【0020】前記化3で表わされる繰り返し単位から成の混合からなる発光層の両面に一対の電極を有する構造 る共重合体の代表的なものは、アリーレンビニレン系共\*50のもの、さらに発光層と陰極の間に電子輸送材料を含有

\*重合体であり、合成法としては特に限定されないが、例えば特開平1-254734号公報、特開平1-79217号公報等に記載されているのと同様な方法を用いて共重合体を得ることができる。すなわち、例えば相当する2種類以上のビス(ハロゲン化メチル)化合物、より具体的には、例えば、2,5-ジヘプチルオキシーpーキシリレンジブロミドとpーキシリレンジブロミドとをキシレン/第三級ブチルアルコール混合溶媒中、第三級ブトキシカリウムを用いて共重合させる脱ハロゲン化水素法をあげることができる。この場合、通常ランダム共重合体となるが、オリゴマーを利用すればブロック共重合体も得られる。

【0021】また、相当するビス (ハロゲン化メチル) 化合物、より具体的には、例えば、2、5ージへプチル オキシーp-キシリレンジブロミドをN,N-ジメチル ホルムアミド溶媒中、トリフェニルホスフィンと反応さ せてホスホニウム塩を合成し、相当するジアルデヒド化 合物、より具体的には、例えば、テレフタルアルデヒド を、例えばエチルアルコール中、リチウムエトキシドを 用いて重合させるWittig反応を挙げることができ る。この場合、交互共重合体が得られる。A r1 基 (ま たはArz 基)を有するジホスホニウム塩およびArz 基 (またはArュ 基) を有するジアルデヒド化合物を反 応させることにより、交互共重合体(化3で1=m=1 に該当) が得られる。勿論、Ar1 とAr2 は同一の基 ではない。さらに、ホスホニウム塩またはジアルデヒド 化合物のいずれか、または両方が2種類以上の化合物の 混合物であれば、それらすべての共重合体が得られる。 この他に、相当するスルホニウム塩をアルカリ存在下に 重合させ、ついで脱スルホニウム塩処理を行うスルホニ ウム塩分解法などが例示される。また、これらの共役系 共重合体を有機EL素子の発光材料として用いる場合、 その純度が発光特性に影響を与えるため、合成後、再沈 精製、クロマトグラフによる分別等の純化処理をするこ とが望ましい。

【0022】本発明のEL素子の構造については、少なくとも一方が透明または半透明である一対の陽極および陰極からなる電極間に設ける発光層中に前述の共役系共重合体から成る発光材料が用いられておれば、特に制限はなく、公知の構造が採用される。例えば、該共重合体からなる発光層、もしくは該共重合体と電荷輸送材料(電子輸送材料と正孔輸送材料の総称を意味する。)との混合からなる発光層の両面に一対の電極を有する構造のよの、さらに発光層と降極の間に電子輸送材料を含有

する電子輸送層または/および発光層と陽極の間に正孔 輸送材料を含む正孔輸送層を積層したものが例示され る。また、発光層や電荷輸送層は1層の場合と複数の層 を組み合わせる場合も本発明に含まれる。さらに、発光 層に例えば下記に述べる該共役系共重合体以外の発光材 料を混合使用してもよい。また、該共役系共重合体およ び/または電荷輸送材料を高分子化合物に分散させた層 とすることもできる。

11

【0023】本発明に使用の共役系共重合体とともに使 用される電荷輸送材料、すなわち、電子輸送材料または 10 正孔輸送材料としては公知のものが使用でき、特に限定 されないが、正孔輸送材料としてはピラゾリン誘導体、 アリールアミン誘導体、スチルベン誘導体、トリフェニ ルジアミン誘導体等が、電子輸送材料としてはオキサジ アゾール誘導体、アントラキノジメタンおよびその誘導 体、ベンゾキノンおよびその誘導体、ナフトキノンおよ びその誘導体、アントラキノンおよびその誘導体、テト ラシアノアンスラキノジメタンおよびその誘導体、フル オレノン誘導体、ジフェニルジシアノエチレンおよびそ の誘導体、ジフェノキノン誘導体等が例示される。

【0024】具体的には、特開昭63-70257号、 同63-175860号公報、特開平2-135359 号、同2-135361号、同2-209988号、同 3-37992号、同3-152184号公報に記載さ れているもの等が例示されるが、正孔輸送材料としては トリフェニルジアミン誘導体、電子輸送材料としてはオ キサジアゾール誘導体、ベンゾキノンおよびその誘導 体、アントラキノンおよびその誘導体が好ましく、特 に、正孔輸送材料としてはN, N'ージフェニルーN,  $N' - UZ (3 - X + N) - 1 \cdot 1' - UZ = 30$ ニルー4、4'ージアミン、電子輸送材料としては2-(4-ピフェニリル) -5-(4-t-ブチルフェニ ル)-1,3,4-オキサジアゾール、ベンゾキノン、 アントラキノンが好ましい。これらのうち、電子輸送性 の化合物と正孔輸送性の化合物のいずれか一方、または 両方を同時に使用すればよい。これらは単独で用いても よいし、2種類以上を混合して用いてもよい。電荷輸送 材料の使用量は使用する化合物の種類等によっても異な るので、十分な成膜性と発光特性を阻害しない量範囲で それらを考慮して適宜決めればよい。

【0025】本発明で発光材料として使用する共役系共 重合体と共に使用できる既知の発光材料としては特に限 定されないが、例えば、ナフタレン誘導体、アントラセ ンおよびその誘導体、ペリレンおよびその誘導体、ポリ メチン系、キサンテン系、クマリン系、シアニン系など の色素類、8-ヒドロキシキノリンおよびその誘導体の 金属錯体、芳香族アミン、テトラフェニルシクロペンタ ジエンおよびその誘導体、テトラフェニルブタジエンお よびその誘導体などを用いることができる。具体的に

393号公報に記載されているもの等、公知のものが使 用可能である。

【0026】つぎに、本発明の有機EL素子の代表的な 作製方法について述べる。陽極および陰極からなる一対 の電極で、透明または半透明な電極としては、ガラス、 透明プラスチック等の透明基板の上に、透明または半透 明の電極を形成したものが用いられる。陽極の材料とし ては、導電性の金属酸化物膜、半透明の金属薄膜等が用 いられる。具体的にはインジウム・スズ・オキサイド (ITO)、酸化スズ (NESA)、Au、Pt、A g、Cu等が用いられる。作製方法としては真空蒸着 法、スパッタリング法、メッキ法などが用いられる。 【0027】次いで、この陽極上に発光材料として上記 共役系共重合体、または該共役系共重合体と電荷輸送材 料を含む発光層を形成する。形成方法としてはこれら材 料の溶液または混合液を使用してスピンコーティング 法、キャスティング法、ディッピング法、バーコート 法、ロールコート法等の塗布法または真空蒸着法が例示 されるが、溶液または混合液をスピンコーティング法、 キャスティング法、ディッピング法、バーコート法、ロ ールコート法等の塗布法により成膜するのが特に好まし 41

【0028】発光層の膜厚としては5Å~10μm、好 ましくは10Å~1µmである。電流密度を上げて発光 効率を上げるためには100~5000Aの範囲が好ま しい。なお、塗布法により薄膜化した場合には、溶媒を 除去するため、減圧下あるいは不活性雰囲気下、30~ 200℃、好ましくは60~100℃の温度で熱処理す ることが望ましい。

【0029】また、別の態様である発光層と電荷輸送層 (正孔輸送層および電子輸送層の総称を意味する。)を 積層する場合には、上記の成膜方法で発光層を設ける前 に陽極の上に正孔輸送層を形成する、および/あるいは 発光層を設けた後にその上に電子輸送層を形成する。 【0030】電荷輸送層の成膜方法としては、特に限定

されないが、粉末状態からの真空蒸着法、あるいは溶液 に溶かした後のスピンコーティング法、キャスティング 法、ディッピング法、バーコート法、ロールコート法等 の塗布法、あるいは高分子化合物と電荷輸送材料とを溶 液状態または溶融状態で混合し分散させた後のスピンコ ーティング法、キャスティング法、ディッピング法、バ ーコート法、ロールコート法等の塗布法を用いることが できる。混合する高分子化合物としては、特に限定され ないが、電荷輸送を極度に阻害しないものが好ましく、 また、可視光に対する吸収が強くないものが好適に用い られる。

【0031】例えば、ポリ(N-ビニルカルバゾー ル)、ポリアニリン及びその誘導体、ポリチオフェン及 びその誘導体、ポリ(p-フェニレンビニレン)及びそ は、例えば特開昭57-51781号、同59-194 50 の誘導体、ポリ(2,5-チエニレンビニレン)及びそ

の誘導体、ポリカーボネート、ポリアクリレート、ポリ メチルアクリレート、ポリメチルメタクリレート、ポリ スチレン、ポリ塩化ビニル、ポリシロキサンなどが例示 される。製膜が容易に行なえるという点では、塗布法を 用いることが好ましい。

【0032】電荷輸送層の膜厚は、少なくともピンホー ルが発生しないような厚みが必要であるが、あまり厚い と、素子の抵抗が増加し、高い駆動電圧が必要となり好 ましくない。したがって、電荷輸送層の膜厚は5Å~1 Oμm、好ましくは10Å~1μm、さらに好ましくは 10 50~2000Aである。

【0033】次いで、発光層または電子輸送層の上に電 極を設ける。この電極は電子注入陰極となる。その材料 としては、特に限定されないが、イオン化エネルギーの 小さい材料が好ましい。例えば、Al、In、Mg、M g-Ag合金、In-Ag合金、Mg-In合金、グラ ファイト薄膜等が用いられる。陰極の作製方法としては 真空蒸着法、スパッタリング法等が用いられる。

#### [0034]

【作用】本発明において、共役系共重合体が発光材料と 20 して優れている点は、融点や分解温度が比較的高いので 熱的に安定で、また塗布法により容易に均一性に優れた 発光層を形成できることから、駆動電圧が低く、高輝度 の素子を作製することができる点である。

#### [0035]

【実施例】以下本発明の実施例を示すが、本発明はこれ らに限定されるものではない。

### 【0036】実施例1

<共重合体の合成>2,5-ジヘプチルオキシーpーキ シリレンジブロミドを、N, N-ジメチルホルムアミド 30 溶媒中、トリフェニルホスフィンと反応させてホスホニ ウム塩を合成した。このホスホニウム塩14.8gとテ レフタルアルデヒド2.0gを、エチルアルコール10 0gに溶解させた。これとは別にリチウム0.24gを エチルアルコール70gと反応させてリチウムエトキシ ドを得た。このリチウムエトキシドをホスホニウム塩と テレフタルアルデヒドのエチルアルコール溶液に滴下 し、室温でWittig反応で重合させた。沈殿を沪別 し、エチルアルコールで洗浄後、乾燥して、2,5-ジ ヘプチルオキシーpーフェニレンビニレンとp-フェニ 40 レンビニレンの交互共重合体3.0gを得た。

【0037】 〈素子の作成〉スパッタリングによって、 200Åの厚みでITO膜を付けたガラス基板に、2、 5-ジヘプチルオキシ-p-フェニレンビニレンとp-フェニレンビニレンの交互共重合体の0.65wt%ク ロロホルム溶液を用い、スピンコートにより3100Å の厚みで成膜した。次いで、これを減圧下60℃で1時 間乾燥した後、その上に陰極として、インジウムを30 00Å蒸着して、有機EL素子を作成した。蒸着のとき の真空度は3×10-6Torr以下であった。この素子 50 OAであった。その上に陰極として、アルミニウムを1

14

に電圧26.7Vを印加したところ、電流密度49.2 mA/cm<sup>2</sup>の電流が流れ、輝度144cd/m<sup>2</sup>の黄 緑色のEL発光が観察された。輝度は電流密度に比例し ていた。また20cd/m²の輝度にするための電圧は 24.6 Vであった。なお、公知の方法で製造した上記 それぞれの繰り返し単位からなる単独重合体のUV吸収 スペクトルの吸収端波長より求めたバンドギャップは、 ポリ(2,5-ジヘプチルオキシ-p-フェニレンビニ レン) が2.12eV、ポリ (p-フェニレンビニレ ン) が2. 42eVであり、その差は0.30eVであ った。

#### 【0038】実施例2

実施例1で使用の交互共重合体に電子輸送材料として2 - (4-ビフェニリル) -5- (4-t-ブチルフェニ ル)-1,3,4-オキサジアゾールを5wt%混合し て発光層を設けた以外は実施例1と同じ方法で有機EL 素子を作成した。発光層の厚さは1370Åであった。 この素子に電圧16.7Vを印加したところ、電流密度 253. 9mA/cm² の電流が流れ、輝度237cd /m² の黄緑色のEL発光が観察された。輝度は電流密 度に比例していた。また20cd/m²の輝度にするた めの電圧は15.4 Vであった。

#### 【0039】比較例1

<ポリ(2,5-ジヘプチルオキシ-p-フェニレンビ ニレン)の合成>特開平1-79217号公報の実施例 5に記載の方法に従い、2,5-ジへプチルオキシ-p ーキシリレンジブロミドをt-ブトキシカリウムで縮重 合してポリ(2,5-ジヘプチルオキシーp-フェニレ ンビニレン)(HO- PPV)を得た。

【0040】<素子の作成>2、5-ジヘプチルオキシ -p-フェニレンビニレンとp-フェニレンビニレンの 交互共重合体の代わりにHO- PPVを用い、溶媒とし てクロロホルムとトルエンの混合溶媒(重量比3/2) を用いた以外は実施例1と同じ方法で有機EL素子を作 成した。発光層の厚さは980Åであった。この素子に 電圧33.3Vを印加したところ、電流密度617.0 mA/cm<sup>2</sup> の電流が流れたが、輝度26cd/m<sup>2</sup> の オレンジ色のEL発光が観察されただけであった。輝度 は電流密度に比例していた。また20cd/m²の輝度 にするための電圧は32.9Vであった。

#### 【0041】比較例2

<ポリ (p-フェニレンビニレン)中間体の合成>特開 平2-32121号公報の実施例2記載の方法で、ポリ (p-フェニレンビニレン) (PPV) 中間体のC1-塩のメタノール溶液を得た。

【0042】<素子の作成>PPV中間体の0.22w t%メタノール溶液を用い、スピンコートにより成膜 し、次いで減圧下200℃で2時間熱処理を行ってPP V薄膜を成膜し、発光層とした。この層の厚さは150

000 A蒸着して有機Eし素子を作成した。蒸着のときの真空度は3×10-6Torr以下であった。この素子に電圧28.0Vを印加したところ、電流密度18.1mA/cm²の電流が流れたが、輝度0.92cd/m²の黄緑色のEL発光が観察されただけであった。輝度は電流密度にほぼ比例していた。また、電圧を上げると絶縁破壊のため20cd/m²の輝度にすることができ

なかった。 【0043】

【発明の効果】以上説明したように、本発明の共役系共重合体を発光材料として用いた有機EL素子は、従来のものと比較して低電圧駆動で、しかも輝度が向上しており、バックライトとしての面状光源、フラットパネルディスプレイ等の装置としての使用が可能である。

16